

Sorption Behavior and Heat of Adsorption of H₂ and
D₂ by Chabazite-type Zeolite田口 明, 中森拓実, 米山優紀
Akira Taguchi, Takumi Nakamori, Yuki Yoneyama富山大学 水素同位体科学研究センター
Hydrogen Isotope Research Center, Univ. Toyama

1. 緒言

水素同位体の分離は、核融合炉燃料サイクルにおけるH, D, Tの分離、精製その他、廉価なD₂の生産などへの応用が期待される。これまで、モレキュラーシーブ(LTA型)やモルデナイト(MOR型)ゼオライトによる水素同位体の分離が報告されている。我々はLTA型(0.41×0.41 nm)よりも小さな細孔径(0.38×0.38 nm)を有するチャバサイト(CHA)型ゼオライトに着目し、CHAの合成と、水素同位体(H₂-D₂)の分離特性の評価を行っている。これまで、H₂-D₂混合ガスの吸脱着測定から、201 Kにおいて、Na型のCHAがLTAよりも高い同位体分離係数を示すことを見出している[1]。本研究では、これらCHA型ゼオライトの同位体分離能の発現について、77~110 KにおけるH₂, D₂の吸着等温線の測定、および吸着熱から分離機構の解明を試みた。

2. 実験

CHA型ゼオライトはFAU型(H-Y, 東ソー(株))を出発原料に用い、KOH水溶液中で100℃、4日間、水熱合成を行い合成した[1]。得られたK-CHAについて、NaOHあるいはCa(OH)₂水溶液を用いてイオン交換を行った(それぞれNa-CHA, Ca-CHA)とする。比較として出発原料であるFAU型(細孔径, 0.74×0.74 nm)を用いた。

3. 結果と考察

合成した試料のXRD測定の結果、K-CHA, Na-CHA, Ca-CHAともCHA型構造を有することを確認した。また、87 KにおけるArの吸着等温線の測定の結果、K-CHA, Na-CHA, Ca-CHAの細孔容積はそれぞれ0.04, 0.05, 0.193 cm³/gが得られた。K-CHA, およびNa-CHAにおける低い細孔容積は、Arが細孔内に侵入できない、分子ふるい効果によるものと考えられる。

図1にCa-CHAの87, および110 KにおけるH₂およびD₂の吸着等温線を示した。Ca-CHAは明瞭なI

型の吸着等温線を示し、H₂, D₂ともよく吸着することが分かる。また、吸着温度が高くなるにつれ、吸着量が減少した。一方、Na-CHAの吸着等温線(87 K)では、H₂, D₂とも吸着量はCa-CHAと比較して低いものであり、この結果はAr吸着から得られた細孔容積測定の結果と矛盾しない。

H₂, D₂の吸着等温線から、H₂, D₂吸着量が約10, 20, 30 cm³/g (Na-CHAでは5, 10 cm³/g)に相当する平衡圧を用い、Clausius-Clapeyronの式から、H₂, D₂それぞれの吸着熱を算出した。その結果、Ca-CHAでは7.54–8.11 (H₂), 7.90–8.19 (D₂) kJ/mol, Na-CHAでは3.50–3.80 (H₂), 3.85 (D₂) kJ/molが得られた。これらの値は化学親和力による吸着熱(10 kJ/mol~)よりも明らかに小さい。このことから、CHA型ゼオライトでは速度論的な吸着が生じていると考えられる。

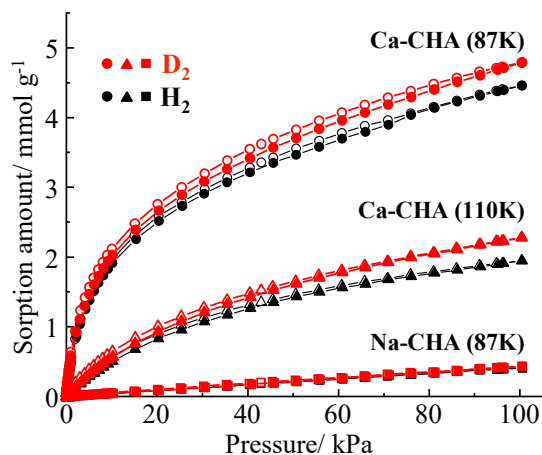


図1 Ca-CHA(87, 110 K), Na-CHA(87 K)のH₂, D₂吸着等温線

[1] A.Taguchi, T.Nakamori, Y.Yoneyama *et al.*, *Fus.Sci.Technol.* 76, 314 (2020).